

論文

ガス電子増幅器の断面観察と PTFE 製電極の開発

若林 正毅*¹⁾ 小宮 一毅*¹⁾ 藤原 康平*¹⁾ 小林 丈士*¹⁾

Cross-section observation and development of the PTFE electrode foil for a GEM

Masaki Wakabayashi*¹⁾, Kazuki Komiya*¹⁾, Kohei Fujiwara*¹⁾, Takeshi Kobayashi*¹⁾

The gas electron multiplier (GEM) is a detector for capturing X-rays and charged particles through gas multiplication. Problems faced by the GEM are that the yield rate is approximately 75% and the GEM foil is easy damaged by abnormal discharges. Thus, improving both the processing method and the reliability is necessary. At first, to analyze the causes for failure, we tried three methods for making the cross-section of the GEM foil. Of the three methods, the ultra-microtome is the most effective method for obtaining the cross-section of the GEM foil. Next, we evaluated both candidate materials for the GEM foil and the micro-fabrication method used for the through-holes in the GEM. As a result, we selected PTFE as the insulator material for the GEM foil and fabricated copper electrodes on the PTFE film by magnetron sputtering. We succeeded in fabricating through-holes with no short-circuits by using femto-second laser processing.

キーワード：ガス電子増幅器，検出器，電極フォイル，故障解析技術，マグネトロンスパッタ，レーザ微細加工

Keywords：Gas electron multiplier, Detector, Electrode foil, Failure analysis technique, Magnetron sputtering, Laser microfabrication

1. まえがき

ガス電子増幅器（GEM）は従来のシンチレータや半導体検出器と比較して，大面積化や低コスト化が容易，高位置分解能，2次元の飛跡検出が可能という優れた特徴を有し，原子核物理分野，放射線医療分野，非破壊検査分野などへの応用が期待されている。

GEM の構造及び GEM フォイル⁽¹⁾と呼ばれる貫通孔あき電極の SEM 像を図1に示す。カソード電極とリードアウト基板の間に GEM フォイルが多段で配置され，ガス増幅により荷電粒子を検出する構造となっている。GEM フォイルは絶縁体の表裏に銅箔が貼り付けられ， $\phi 70\mu\text{m}$ の貫通孔が $140\mu\text{m}$ ピッチで無数に形成された厚さが $100\mu\text{m}$ 程度の電極シートである。GEM フォイルの作製方法は，欧州原子核研究機構（CERN）によるケミカルエッチングとプラズマエッチングによる方法⁽²⁾，東京大学とサイエナジー社によるケミカルエッチングと CO_2 レーザを組み合わせた方法⁽³⁾などがあるが，GEM フォイルの歩留まりが悪いことや故障しやすいなどの問題⁽⁴⁾があり，改善が求められている。

都産技研には中小企業や研究機関より，GEM の故障不具合や GEM の信頼性向上に関する技術相談が寄せられている。本研究では，GEM フォイルの故障原因を特定するための断面作製方法⁽⁵⁾と，新しい GEM フォイルの作製⁽⁶⁾について検討を行ったので報告する。

2. GEM フォイルの断面観察手法の検討

2.1 GEM の故障解析における問題点 GEM の歩留まり向上や故障原因を特定するためには，故障した GEM フォイルの詳細な観察が必須であると言える。しかし，GEM フォイルに設けられた数万個以上の貫通孔から故障箇所を特定することが容易でないことや，最適な断面作製方法が検討されていないため，貫通孔内部の定性分析や詳細観察が困難である。GEM の故障原因として絶縁材料のトラッキングや孔内部の炭素付着，異物混入による短絡などが考えられているが，上述の理由から，故障原因の解明には至っていない。

2.2 断面作製に最適な加工法の調査 まず，GEM の故障解析を行うための最適な断面観察手法を明らかにすることを目的として，研磨・クロスセクションポリッシュ・マイクロトームの3種類の手法を用い，GEM フォイルの断面作製を試みた。実験には，市販の液晶ポリマ（LCP）製 GEM フォイル（厚み約 $100\mu\text{m}$ ）を用いた。

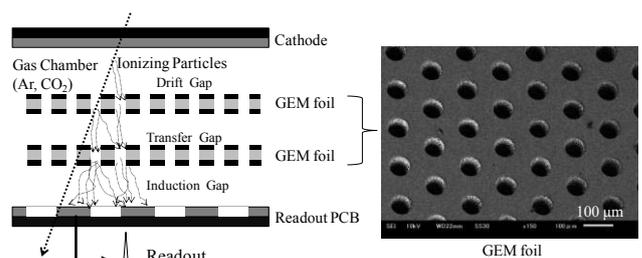


図1. GEM の構造

(1) 研磨 GEM フォイルは全体厚みが約 100 μm と薄く容易に変形するため、樹脂包埋を行う必要があった。1 μm の粒径の研磨紙を用い、回転数 2500rpm にて研磨した GEM フォイルの断面観察例を図 2 に示す。表裏に貼りつけられている銅箔の厚みは約 16 μm 、絶縁材料である LCP の厚みは 100 μm であることがわかった。しかし、孔の内部に樹脂を充填しているため、孔側面の詳細な観察はできなかった。したがって、研磨による断面作製では孔側面のトラッキングの観察や元素分析が難しく、故障解析のための断面作製手法として不適であった。

(2) クロスセクションポリリッシャ (CP) CP はアルゴンイオンビームによって断面を作製する装置である。研磨と比較して、キズやダレの少ない断面が得やすいといったメリットがある。CP は日本電子社製、IB-90100 を用い、加速電圧は 3.0kV とした。加工には 6 時間を要した。図 3 に CP で作製した GEM フォイル断面を反射電子検出器により観察した結果を示す。樹脂包埋が必要ないため、孔側面の形状を観察することができた。しかし、孔側面には厚み 1~5 μm のコントラストの異なる層があることがわかった。これは、イオンビームによって削られて飛散した樹脂が孔側面に再付着したものと考えられる。CP を用いて作製した断面では、付着の影響により、本来の孔側面の観察ができないことがわかった。

(3) ミクロトーム ミクロトームとは透過型電子顕微鏡 (TEM) の超薄切片を作製するために用いられる装置である。ミクロトームは機械的な切削であるため、樹脂包埋の必要がないこと、また CP で見られたような飛散物の影響が生じ難い加工法であると言える。今回は切断した薄片を得るのが目的ではなく、GEM フォイルを少しずつ所望の位置まで切削して断面を作製するのが目的であるため、ミクロトーム本来の使用法とは異なっている。加工にはウルトラミクトーム (Leica 社製, UltraCut S) とダイヤモンドナイフ (Diatom 社製, Ultratrim) を用いた。ダイヤモンドナイフの送りピッチは 15nm とした。ミクロトームにより作製した GEM フォイル断面を図 4a) に示す。同図からはバリの発生が確認できた。切削方向から推察すると、孔の外周部でナイフの抜け方向に材料が引っ張られて塑性変形したものと考えられた。そこで、バリの発生を低減するため、仕上げ工程を追加することにした。具体的には、任意の位置まで切削したのち、サンプルを 180° 回転させ、逆方向から 300nm の送り量で再度切削する工程を追加した。仕上げを行ったあとに断面観察した結果を図 4b) に示す。断面には付着物がほとんど無く、孔の側面状態を詳細に観察可能であった。市販 GEM フォイルの貫通孔内壁には $\phi 1\sim 10\mu\text{m}$ の微細な穴が多数存在し、荒れていることが明らかとなった。

以上より、ミクロトームを用いることで、GEM フォイルの精緻な断面が作製可能であることを見出した。

2.3 市販 GEM フォイルの不良品の断面観察 市販 GEM フォイルの製造工程内で発生した不良部位の断面を観察し、故障原因を推定することにした。まず、光学顕微鏡

にて不具合箇所とみられる部分を 2 ヶ所見つけ出し、ミクロトームによって同部位の断面を作製した。光学顕微鏡写真と SEM 観察結果を図 5 に示す。不良箇所 A には 50 μm 以上の大きな塊が貫通孔内部に詰まっており、不良箇所 B では一度熔融した付着物が穴内部に存在しているのが確認できた。エネルギー分散型 X 線分析 (EDX) の結果、不良箇所 A の塊は 74.2at% が炭素であり、基材の LCP と推察される。また、不良箇所 B の付着物は 24.2at% の銅と 44.6at% の炭素が検出された。いずれも電位勾配に影響を与えるため、異常放電や増幅率低下の原因となり得る欠陥であると言える。製造工程のうち、レーザー加工で生じた樹脂の飛散物が貫通孔内に再付着した可能性と、エッチング時に生じた付着物である可能性が考えられる。したがって、最終工程の洗浄をより十分に行うことで歩留まりが向上するものと推察される。また、貫通孔内壁の荒れを低減した GEM フォイルが開発できれば、異物の付着が抑制されると考えられる。

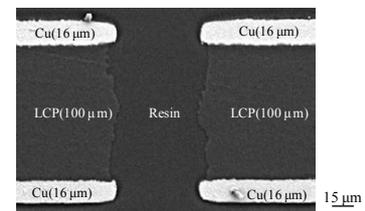


図 2. 研磨による断面

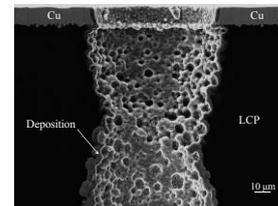
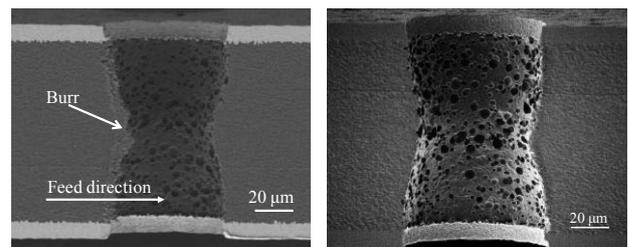


図 3. CP による断面



a)仕上げなし b)仕上げ加工後

図 4. ミクロトームにより作製した断面

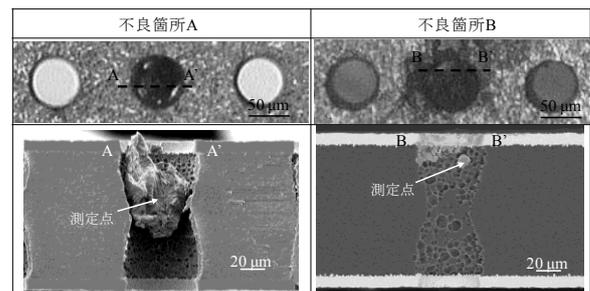


図 5. 製造時の不良箇所の観察

3. PTFE 製 GEM フォイルの開発

3.1 基材の選定 市販の GEM フォイルに用いられている基材は、銅箔が表裏に熱圧着されたフレキシブル基板用のポリイミド (PI) もしくは LCP である。これら基材は入手の容易さから選定されており、GEM フォイルの絶縁材料としてどのような基材が最適か、十分な検討がなされていない。GEM フォイルは使用時に異常放電が生じることが報告されている。本研究では、アーク放電によって基材がダメージを受け、短絡など故障の原因となっているのではないかと考えた。表1に一般的な材料の物性値を示す。GEM フォイルの絶縁材料である PI と LCP の耐アーク性はそれぞれ 135s, 186s であるのに対し、ポリテトラフルオロエチレン (PTFE) の耐アーク性は 300s 以上と非常に高いことがわかった⁽⁷⁾⁽⁸⁾。耐アーク性は試料表面に規定間隔でアーク放電を発生させ、アーク放電が消滅するまでの時間で定義される⁽⁹⁾。したがって、この値が大きいほうが、炭化導電路形成による絶縁破壊が生じにくい材料であると言える。

そこで本研究では、PTFE で GEM フォイルを作製可能かどうか検討することにした。以下の加工実験では比較のため、PTFE の他に入手が容易なポリエチレンテレフタレート (PET) やポリエチレンナフタレート (PEN), PI についても加工を試みることにした。なお、穴あけ加工の簡便性を考慮し、実験ではすべて厚み 50 μm のフィルムを使用した。

3.2 電極部の成膜実験 PTFE においては銅箔を両面に熱圧着した市販品が存在しなかった。この理由は、PTFE が熱に弱く熱圧着が難しい上、接着剤との密着性が悪いためと推察される。そこでまず、PTFE に対してできるだけ熱影響が生じないよう、最適な銅の成膜条件を見出すことにした。成膜装置には、マグネトロンスパッタ装置 (アルバック社製, SX-200) を選定した。

試料は PI, PET, PEN, PTFE の4種類とし、成膜条件は DC 1kW, T/S 距離 120mm, 基板回転数 10rpm, プロセス圧力 0.67Pa, 基板加熱なし, 成膜時間は 30s, 120s, 300s, 660s とした。図6に膜厚と成膜時間の関係を示すが、銅の成膜レートは約 90nm/min であった。成膜時間が 120s 以上の時に PTFE にソリが生じることがわかった。すべての材料に対してソリなく成膜できた条件は成膜時間 30s のみであり、このときの銅の膜厚を接触式段差計 (Veeco 社製, Dektak150) で計測した結果、40nm \pm 3nm であった。

3.3 電気的特性の評価 銅を約 40nm 片面成膜した試料のシート抵抗を三菱化学社製, Loresta-GP MCP-T600 (JIS K 7194 準拠) を用いて4探針法で測定した。表2に示すように、シート抵抗は PI, PET, PEN が 1.06 Ω /sq.~1.39 Ω /sq., PTFE では 4.4 Ω /sq.であり、いずれの材料においても電極として十分な機能を有することがわかった。成膜前の基材の表面粗さは PI, PET, PEN がそれぞれ 14.2nmRa, 19.6nmRa, 16.5nmRa であるのに対し、PTFE が 54.1nmRa であった。このことから、PTFE のシート抵抗が他より高くなったのは成膜した銅の膜厚が母材の表面粗さに対して小さいためと推

察される。より低いシート抵抗が求められる場合には、あらかじめ表面粗さが小さいフィルムを入手する必要があると言える。しかしながら、GEM フォイルの導電膜においては 500M Ω /cm 以上の高抵抗な GEM フォイルが用いられることもあるため⁽¹⁰⁾、電極の抵抗値はさほど問題にならないと言える。

3.4 成膜部の密着性評価 成膜した銅の密着性を評価するため、セロハンテープによる剥離試験を行った (JIS JISK5600-5-6 クロスカット法, 旧 JIS K 5400, 付着性-基盤目試験)。銅を成膜した試料表面の 10mm 角の領域に対し、1mm 間隔で格子状に切れ込みを入れ、試験片とした。また、セキスイ社製のセロハンテープを用いた。剥離試験の結果、約 40nm の厚みで銅を成膜した4種類の試料すべてにおいて剥離は見られず、密着性が高いことがわかった。一方、銅を 170nm 成膜した PTFE の試験片では、65%以上の割合で剥離が見られ、密着性が低いことがわかった。これは、銅が厚いため、残留応力で割れ易くなっていたことに加え、成膜時に PTFE にソリが生じ、銅が剥がれやすくなっていたためと考えられる。

3.5 貫通孔加工実験 市販の GEM フォイルの加工方法は前述の通り、ケミカルエッチングとプラズマエッチングによる方法、ケミカルエッチングと CO₂ レーザを組み合わせた方法などが用いられている。一方、PTFE は耐薬性が高くケミカルエッチングでは加工が難しい。そこでまず、PTFE に対して CO₂ レーザによる穴あけを試みた。レーザ出力 30W のときの加工結果を図7に示すが、溶融飛散物が孔内部に堆積し、精緻な貫通孔形成が不可能であった。

次に、本研究では非熱加工かつ多光子吸収により、各種材料に対して微細加工が容易なフェムト秒レーザを選定し、貫通孔の加工を試みることにした。使用したフェムト秒レーザは中心波長 780nm, 平均出力 3W, 発振周波数 1kHz である。レーザ光はガルバノスキャナにより所望の位置に走査し、焦点距離 100mm のテレセントリック f θ レンズを用いて試料表面に集光した。試料には銅を両面に厚み 40nm で成膜した PI, PET, PEN, PTFE を使用し、それぞれ 5mm 角の範囲に対してレーザ出力 30mW, 走査速度 1mm/s, ドウェル時間 100ms, 100 μm ピッチの千鳥配列で加工を行った。PET, PEN においては1回照射で、PI は同条件で2回照射したところ貫通孔の形成が可能であった。一方、PTFE では、照射回数を多くすると貫通孔が形成される前に表面の銅が完全に除去されてしまった。そこで PTFE に対しては、1つの貫通孔に対してレーザ光を 0.1mm/s で ϕ 50 μm の円形に走査したところ、貫通孔が形成可能となった。PTFE については 200 μm ピッチの千鳥配列で貫通孔を 2mm \times 2mm の領域に加工した。フェムト秒レーザによる各種フィルムの加工部の上面と断面観察結果を図8に示す。なお、断面作製にはマイクロトームを用いた。フェムト秒レーザによる加工部は表面に飛散物の付着があり、除去や洗浄工程が必要であることがわかった。一方、市販 GEM フォイルと比較してテープが大きいものの、貫通孔内壁の荒れが小さいことが観察された。また、テストを用いて表裏の

電極が短絡していないことを確認した。

3. 6 GEM フォイル開発のまとめ GEM の信頼性向上と歩留まり改善のため、GEM フォイルに用いられる基材の選定と貫通孔の形成方法について検討した。電極作製実験では、マグネトロンスパッタによる銅の最適な成膜条件を明らかにするとともに、シート抵抗と密着性評価を行い、GEM フォイルに使用可能な電極部を得た。貫通孔形成実験では、両面成膜した4種類の基材に対してフェムト秒レーザーによる加工を行い、市販品よりも穴内部の荒れが改善できることを見出した。最終的に、従来品よりも耐アーク性が優れた PTFE を絶縁材料に用いた新しいGEM フォイルの作製方法を見出した。

4. まとめ

本研究では、GEM フォイルの断面作製手法の検討と、新しいGEM フォイルの試作開発を行った。断面作製手法の検討では、マイクロトームを用いることでGEM フォイルの精緻な断面が作製可能であることを明らかにした。従来困難であったGEM フォイルの貫通孔内壁に対するEDXなどの定性・定量分析が可能となることから、今後はGEMの故障原因の究明に寄与できるものと考えられる。また、新しいGEM フォイルの開発では、マグネトロンスパッタによる導電膜作製とフェムト秒レーザー加工による貫通孔形成により、PTFE製のGEM フォイルを試作することができた。今後はガスチェンバを作製し、増幅率や故障率などの評価実験を行っていく予定である。

最後に、本研究の遂行にあたり様々なご助言をいただいた東京大学の浜垣秀樹教授と理化学研究所の竹谷篤先生に深謝するとともに、フェムト秒レーザーの使用にあたりご協力いただいた埼玉大学大学院 池野順一教授に感謝の意を表す。

(平成24年5月18日受付, 平成24年7月6日再受付)

表1. 樹脂材料の物性値

特性	PI	LCP	PET	PEN	PTFE
密度 g/cm ³	1.43	1.35	1.4	1.36	2.13~2.20
引張強さ MPa	315	108	48~73	193	20~35
吸水率 %	1.3	0.08	0.4	0.3	0
絶縁破壊電圧 kV/mm	22	26~40	17~26	20	19
体積抵抗率 Ω・cm	10 ¹⁷	6x10 ¹⁶	10 ¹⁷	10 ¹⁷	>10 ¹⁸
耐アーク性 s	135	186	117	34	>300
融点 °C	なし 800°C以上で炭化	なし 分解温度>450°C	258	269	327

*物性値については参考文献(7), (8)から引用し作成した

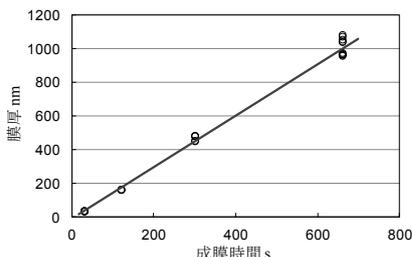


図6. 膜厚と成膜時間の関係

表2. 電気特性評価

ワーク	シート抵抗 Ω/sq.	接触抵抗 Ω	基材の表面粗さ
Cu / PI	1.06	0.248	14.2nmRa
Cu / PET	1.12	0.276	19.6nmRa
Cu / PEN	1.39	0.341	16.5nmRa
Cu / PTFE	4.43	0.594	54.1nmRa

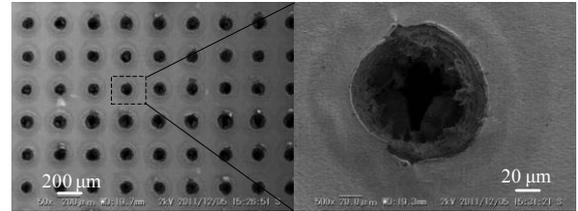


図7. CO₂レーザーで加工したPTFEの貫通孔

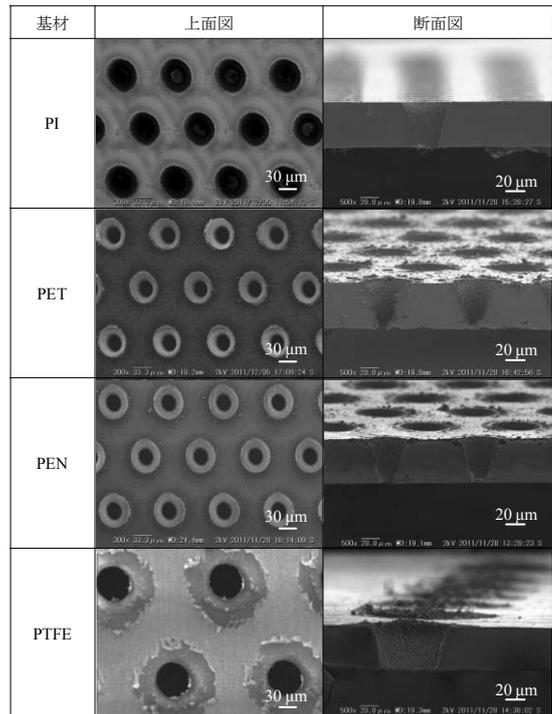


図8. フェムト秒レーザーで加工した貫通孔

文 献

- (1)宇野彰二:「MPGDを用いた中性子・硬X線画像装置開発」, HIGH ENERGY NEWS, Vol.30, No.2, pp.66(2011)
- (2)M. Inuzuka, et al.: Nucl. Instr. and Meth., A 525, pp.529 (2004).
- (3)T. Tamagawa, et al.: Nucl. Instr. and Meth., A 560, pp.418 (2006).
- (4)A. Cardini: A systematic study on discharge-induced GEM-failure phenomena, Nuclear Science Symposium Conference Record, pp.1127(2005).
- (5)小宮一毅他:「ガス電子増幅器の故障解析方法の検討」, 2012年度精密工学会春季大会学術講演会講演論文集, pp.97-98(2012)
- (6)若林正毅他:「ガス電子増幅器における電極基材の検討」, 2012年度精密工学会春季大会学術講演会講演論文集, pp.25-26(2012)
- (7)DESIGN MECHANIC for mechanical engineers & designers, http://homepage1.nifty.com/seas/database/ep/ep_top.htm(2011.11).
- (8)株式会社 KDA :「プラスチックの基礎」, http://www.kda1969.com/study/study_pla_detail3.htm(2011.11)
- (9)日本工業標準調査会: JIS K 6911-1995, pp.35-36(1995)
- (10)高木敦子他:「J-PARC E16 実験 GEM Tracker の内部構成最適化と性能評価〜読み出し基板の改善〜」, http://nucl.phys.s.u-tokyo.ac.jp/ozawa_g/data/JPS_takagi.pdf(2012.4)